

11) Numéro de publication : 0 553 581 A2

DEM

12

**DEMANDE DE BREVET EUROPEEN** 

(21) Numéro de dépôt : 92403439.0

(22) Date de dépôt : 17.12.92

(51) Int. Cl.<sup>5</sup>: **C08L 77/00**, C08L 77/06,

// C08G69/36, (C08L77/00,

77:06)

30 Priorité: 31.12.91 FR 916402

(43) Date de publication de la demande : 04.08.93 Bulletin 93/31

Etats contractants désignés : AT BE CH DE DK ES FR GB GR IE IT LI LU NL PT SE

71 Demandeur: ELF ATOCHEM S.A. 4 & 8, Cours Michelet La Défense 10 F-92800 Puteaux (FR) 72 Inventeur : Maj, Philippe Im Krahfuss 27 W-5340 Bad Honnef (DE) Inventeur : Blondel, Philippe Côte Saint-Michel, No. 2 Le Mont Joli

F-27300 Bernay (FR)

Mandataire : Luziau, Nelly ELF ATOCHEM S.A. DRDI/DPI 4-8, Cours Michelet La Défense 10

F-92800 Puteaux, Hauts-de-Seine (FR)

(54) Compositions amorphes transparentes à tenue aux agents chimiques élévée.

57) La présente invention a pour objet de nouvelles compositions amorphes transparentes et, plus particulièrement, des compositions amorphes transparentes présentant une tenue aux agents chimiques (solvants) élevée, ainsi que les objets fabriqués à partir de celles-ci.

Ces compositions comprennent deux polyamides constitués de motifs aliphatiques, acide térephtalique et/ou isophtalique, diamine cycloaliphatique. L'un des deux polyamides a une teneur en motif aliphatique élevée tandis que l'autre a une teneur en motif aliphatique faible.

EP 0 553 581 A2

La présente invention a pour objet de nouvelles compositions amorphes transparentes et, plus particulièrement, des compositions amorphes transparentes présentant une tenue aux agents chimiques (solvants) élevée, ainsi que les objets fabriqués à partir de celles-ci.

EP-A-0 313 436 (au nom de la demanderesse) ainsi que FR-A-2 575 756 et FR-A-2 606 416 (EMS) décrivent et revendiquent des polyamides amorphes transparents constitués de motifs aliphatiques à plus de 7 carbones, de diamine cycloaliphatique et d'acide térephtalique et/ou isophtalique. Ces polyamides amorphes présentent une tenue aux agents chimiques (solvants) qui est fonction de la proportion en poids de motif aliphatique dans le polyamide amorphe. Afin d'apprécier la tenue aux agents chimiques (solvants), on utilise souvent comme paramètre l'absorption d'éthanol. Ainsi, dans les cas précités, lorsque l'on porte l'absorption d'éthanol en fonction de la proportion en poids de motif aliphatique, la courbe ainsi obtenue présente un profil de cloche. Pour des pourcentages faibles, l'absorption est faible, donc la tenue aux solvants est bonne, et pour des pourcentages élevés, les résultats sont identiques. Par contre, pour des pourcentages intermédiaires, l'absorption est élevée, donc la tenue aux agents chimiques (solvants) est faible.

Pour des proportions pondérales en motifs aliphatiques faibles, le polyamide contient de grandes proportions de diacide aromatique et de diamine cycloaliphatique, qui sont des composés d'un coût élevé et, par là, ce polyamide lui-même est cher. Pour des proportions pondérales en motifs aliphatiques élevées, le polyamide est certes d'un coût modéré mais présente l'inconvénient de propriétés thermiques et mécaniques faibles. Ainsi, l'homme de l'art recherchant un polyamide amorphe transparent ayant une tenue aux agents chimiques (solvants) élevée n'est pas tenté d'utiliser des polyamides à pourcentage en motifs aliphatique intermédiaires puisque ceux-ci ne sont pas appropriés, et doit donc soit choisir des polyamides à proportion en motif aliphatique faible, c'est-à-dire d'un coût élevé, soit des polyamides à proportion en motif aliphatique élevée, c'est-à-dire avec des propriétés mécaniques et thermiques faibles.

De façon surprenante, la demanderesse a trouvé que ces inconvénients sont obviés grâce à la présente invention

Ainsi, la présente invention fournit une composition amorphe transparente à tenue aux agents chimiques élevée comprenant, en poids:

a) 1 à 99% d'un premier polyamide caractérisé par les enchaînements:

35 €

20

25

30

45

dans lesquels:

y<sub>1</sub> et y<sub>2</sub> sont des nombres dont la somme y<sub>1</sub> + y<sub>2</sub> est comprise entre 10 et 200;

m, p, m', p' sont des nombres égaux ou supérieurs à 0; 🐇

s t

Z et Z', dans les motifs aliphatiques -NH-Z-CO- et -NH-Z'-CO-, identiques ou différents sont soit un segment polyméthylène {CH<sub>2</sub>}<sub>n</sub>où n est un nombre entier égal ou supérieur à 6 et de préférence compris entre 7 et 11, soit une séquence contenant une fonction amide résultant de la condensation sensiblement stoechiométrique d'une ou plusieurs diamine(s) aliphatique(s) contenant au moins 4 atomes de carbone entre les fonctions amines et d'un ou plusieurs diacide(s) carboxylique(s) aliphatique(s) contenant au moins 4, et de préférence au moins 6, atomes de carbone entre les fonctions acides;

HN-R-NH-représente une amine cycloalinhatique et/ou alinhatique et/ou arylalinhatique:

aliphatique contenant plus de 4, de préférence 6, atomes de carbone entre les fonctions acides, les dits enchaînements étant présents en des proportions telles que les motifs aliphatiques représentent

moins de 55% en poids dudit premier polyamide; et b) 99 à 1% d'un second polyamide caractérisé par les enchaînements:

et region of the second of the

dans lesquels:

5

10

15

20

25

30

35

55

y'<sub>1</sub> et y'<sub>2</sub> sont des nombres dont la somme y'<sub>1</sub> + y'<sub>2</sub> est comprise entre 10 et 200;

m", p", m"', p"' sont des nombres égaux ou supérieurs à 0;

Z" et Z", dans les motifs aliphatiques -NH-Z"-CO- et -NH-Z"-CO-, identiques ou différents sont soit un segment polyméthylène  $\{CH_2\}_n$ , où n' est un nombre entier égal ou supérieur à 6 et de préférence compris entre 7 et 11, soit une séquence contenant une fonction amide résultant de la condensation sensiblement stoechiométrique d'une ou plusieurs diamine(s) aliphatique(s) contenant au moins 4 atomes de carbone entre les fonctions amines et d'un ou plusieurs diacide(s) carboxylique(s) aliphatique(s) contenant au moins 4, et de préférence au moins 6, atomes de carbone entre les fonctions acides;

-HN-R'-NH- représente une amine cycloaliphatique et/ou aliphatique et/ou arylaliphatique; le diacide aromatique pouvant être remplacé, à raison d'au plus 30% en mole, par un diacide carboxylique aliphatique contenant plus de 4, de préférence 6, atomes de carbone entre les fonctions acides, lesdits enchaînements étant présents en des proportions telles que les motifs aliphatiques représentent plus de 55% en poids dudit second polyamide.

Les motifs aliphatiques -NH-Z(Z")-CO- et -NH-Z'(Z"")-CO- sont obtenus, lors de la synthèse, à partir de lactame, d'aminoacide correspondant, ou d'une condensation sensiblement stoechiométrique d'une ou plusieurs diamine(s) aliphatique(s) et d'un ou plusieurs diacide(s) carboxylique(s) aliphatique(s). Les lactames contiennent au moins 7 atomes de carbone, de préférence 8 à 12. Les lactames préférés sont le capryllactame ou lactame 8, le dodécalactame, l'undécanolactame, le lauryllactame, ou lactame 12, ci-après désigné L12. Particulièrement préféré est le L12 conduisant au motif 12.

L'aminoacide correspondant est l' $\omega$ -aminoacide contenant autant d'atomes de carbone que le lactame correspondant. Les  $\omega$ -aminoacides contiennent au moins 7 atomes de carbone, de préférence 8 à 12. Les  $\omega$ -aminoacides préférés sont l'acide 10-aminodécanoïque, l'acide 11-amino-undécanoïque, l'acide 12-aminododécanoïque.

Le diacide carboxylique aliphatique est un  $\alpha,\omega$ -diacide carboxylique possédant au moins 4 atomes de carbone (non compris les atomes de carbone du groupe carboxylique), de préférence au moins 6, dans la chaîne carbonée linéaire ou ramifiée. Les diacides carboxyliques préférés sont l'acide adipique, l'acide azélaïque, l'acide sébacique et l'acide 1,12-dodécanoïque.

Le terme "diamine aliphatique" tel qu'utilisé dans la présente invention désigne une α, ω-diamine contenant entre les groupes amino terminaux au moins 4 atomes de carbone, de préférence 6 à 12. La chaîne carbonée est linéaire (polyméthylènediamine) ou ramifiée. Des mélanges de diamines aliphatiques sont aussi envisagés dans la présente invention. Des diamines aliphatiques préférées sont l'hexaméthylènediamine (HMDA), la 2,2,4- et/ou 2,4,4-triméthylhexaméthylènediamine, la dodécaméthylènediamine, la triméthylènexaméthylènediamine.

Le terme "diamine cycloaliphatique" tel qu'utilisé dans la présente invention désigne une amine de formule:

Francisco Mario

 $\gamma_{(2)}, \gamma_{(3)}, \gamma_{(3)}$ 

dans laquelle:

15

25

50

A(A') et B(B'), identiques ou différentes, représentent l'hydrogène, le radical méthyle, le radical éthyle ou le radical isopropyle;

X(X') et Y(Y'), identiques ou différents, représentent l'hydrogène ou le radical méthyle; q(q')est un nombre entier compris entre 0 et 6;

m(m')vaut 0 ou 1.

Des mélanges de diamines cycloaliphatiques sont aussi envisagés dans la présente invention.

Le terme "diamine cycloaliphatique" couvre aussi, au sens de la présente invention, les diamines comportant une structure cycloaliphatique telle que définie par la formule ci-dessus dans leur chaîne carbonée. On peut citer à titre d'exemple l'isophoronediamine et le 3,6-diaminométhyltricyclodécane. Des exemples de diamines cycloaliphatiques sont, à titre non limitatif: isophoronediamine, le bis(4-aminocyclohexyl)méthane (BACM), le bis(3-méthyl-4-aminocyclohexyl)méthane (BACM), le bis(3-méthyl-4-amino-5-éthylcyclohexyl)méthane, le 1,2-bis(4-aminocyclohexyl)propane et le 2,2'-bis(3-méthyl-4-aminocyclohexyl)propane.

Le terme "diamine(s) arylaliphatique(s)" tel qu'utilisé dans la présente invention désigne les amines de formule:

# H<sub>2</sub>N-R<sub>1</sub>-Ar-R<sub>2</sub>-NH<sub>2</sub>

dans laquelle:

R<sub>1</sub> et-R<sub>2</sub>, identiques ou différents, sont des résidus hydrocarbonés en C<sub>1</sub> à C<sub>6</sub>, linéaires ou ramifiés; est un radical aromatique divalent qui désigne un cycle aromatique ou deux ou plusieurs cycles aromatiques liées par un groupe alkyle, ledit radical Ar pouvant par ailleurs être substitué selon toute configuration, ortho, méta, para

Des mélanges de diamines arylaliphatiques sont aussi envisagés dans la présente invention. A titre d'exemple, on peut citer la méta-xylylènediamine (pour laquelle Ar = m-phényle,  $R_1 = R_2 = -CH_2$ -).

Les dérivés saturés ou ceux comportant une structure aromatique-aliphatique dans leur chaîne carbonée sont aussi envisagées dans la présente invention. A titre d'exemple, on peut citer le 1,3-bisaminométhylcyclohexane et le 1,3-diaminométhylnorbornane.

Des mélanges de diamine(s) aliphatique(s) et/ou cycloaliphatique(s) et/ou arylaliphatique(s), notamment d'isomères, sont aussi envisagés dans la présente invention.

Le terme "sensiblement stoechiométrique" signifie un rapport en mole diamine/diacide compris entre 1,1/1 et 1/1,1.

Ainsi, le terme "condensation sensiblement stoechiométrique d'une ou plusieurs diamine(s) et d'un ou plusieurs diacide (s)" peut représenter le motif 6,6 ou 6,12 par exemple. Le terme "polyamide amorphe", tel qu'utilisé dans la présente invention, désigne un polyamide dont de fusion mesurée par DSC à 20°C/mn après refroidissement à 40°C/mn est inférieure à 3 cal/g.

Le terme "polyamide transparent", tel qu'utilisé dans la présente invention, désigne un polyamide dont le facteur de transmission, lorsque ce polyamide est sous forme d'une plaque mince de 2 mm d'épaisseur, est d'au moins 70%.

Selon un mode de réalisation préféré de la présente invention, dans ledit premier polyamide, les motifs aliphatiques représentent moins de 45% en poids dudit premier polyamide, avantageusement moins de 40%.

Selon un autre mode de réalisation préféré de la présente invention, dans ledit second polyamide, les motifs aliphatiques représentent plus de 60% en poids dudit second polyamide, avantageusement plus de 70%.

Préférentiellement, la composition comprend en poids:

a) 5 à 95% dudit premier polyamide; et

a) 20 à 80% dudit premier polyamide; et

amide, et

b) 80 à 20% dudit second polyamide.

Selon un mode de réalisation préféré de la présente invention, les motifs aliphatiques desdits premier et second polyamides sont choisis dans le groupe consistant en les motifs issus du capryllactame, du lauryllactame, de l'acide 12-aminododécanoïque, de l'acide 11-amino-undécanoïque, de l'acide 10-aminododécanoïque, et leurs mélanges. Avantageusement, le motif aliphatique désdits premier et second polyamides est le motif 12 issu du lauryllactame.

Selon un autre mode de réalisation préféré de la présente invention, la diamine desdits premier et second polyamides est une diamine cycloaliphatique. Avantageusement, ladite diamine a pour formule:

$$A(A')$$
 $A(A')$ 
 $A(A'$ 

dans laquelle:

10

15

20

30

A (A') et B (B'), identiques ou différents, représentent l'atome d'hydrogène ou le radical méthyle;

X (X') et Y (Y'), identiques ou différents, représentent l'atome d'hydrogène ou le radical méthyle; et

q (q') est un nombre entier compris entre 1 et 3;

éventuellement remplacée jusqu'à 50% en mole par l'isophoronediamine.

Préférentiellement, la diamine cycloaliphatique desdits premier et second polyamides est le bis-(3-méthyl-4-aminocyclohexyl)méthane ou le bis-(4-aminocyclohexyl)méthane, éventuellement remplacée jusqu'à 50% en mole par l'isophoronediamine.

Un autre mode de réalisation de la présente invention consiste en une composition dans laquelle, dans le(s)dit(s) premier et/ou second polyamide(s), le rapport  $y_1/y_1+y_2$  et/ou le rapport  $y_1/y_1+y_2$  est(sont) supérieur(s) à 0,5.

Les polyamides peuvent être synthétisés par n'importe quel procédé approprié connu dans l'art. De préférence, ils sont préparés selon le procédé tel que décrit et revendiqué dans EP-0 313 436, au nom de la demanderesse.

Les compositions selon la présente invention peuvent être préparées par n'importe quel procédé de mélange connu de l'homme de l'art, pourvu que le mélange soit effectué à une température suffisante pour que les polyamides soient à l'état fondu.

Un procédé préféré est le compoundage, qui consiste à charger les polyamides sous forme de granulés dans une extrudeuse classique, à une température supérieure à la température de transition vitreuse Tg, avantageusement entre 250°C et 400°C.

Un autre procédé consiste à mélanger lesdits premier et second polyamides, dont l'un au moins est à l'état de prépolymère dont le degré de polymérisation est d'au moins 50%, en présence d'un catalyseur d'amidification ou de transamidification, tel que l'acide phosphorique ou hypophosphoreux.

Les compositions selon la présente invention sont amorphes et transparentes, avec une tenue aux agents chimiques (solvants) élevée ainsi que de bonnes propriétés mécaniques et thermiques, alors que le polyamide présentant la même proportion de motif aliphatique mais obtenu directement par synthèse a une tenue aux solvants médiocre.

D'autres composants peuvent être ajoutés à la présente composition, tels que les additifs et charges classiques, ou un autre polyamide. Ce dernier polyamide peut être un polyamide amorphe tel que décrit ci-avant. Les additifs classiques comprennent, par exemple, les stabilisants à la lumière et/ou la chaleur, colorants, azurants optiqués, plastifiants, agents de démoulage, agents d'ignifugation et autres. Les charges classiques comprennent, par exemple, les charges minérales telles que scories, kaolin, magnésie, talc, fibres de verre.

La présente invention a donc aussi pour objet une composition comprenant de plus une charge et/ou un additif classique.

La présente invention a aussi pour objet les objets obtenus à partir de la présente composition amorphe transparente. Ces objets peuvent être fabriqués par tout procédé classique tel que l'extrusion, le moulage-injection et autre.

Dans les exemples qui suivent, le module de flexion est déterminé suivant la norme ASTM D 790 après conditionnement. L'absorption à l'éthanol est mesurée sur des éprouvettes type IFC Institut Français du Caout-

chouc d'épaisseur 2 mm et de poids environ 1 g, préalablement séchées, après 8 jours d'immersion dans l'éthanol pur à 25°C. La valeur est donnée en pourcentage d'augmentation du poids.

Les exemples suivants sont donnés à titre illustratif de la présente invention et ne doivent pas être considérés comme limitatifs de la portée de celle-ci, susceptible de nombreuses variantes aisément accessibles à l'homme de l'art.

#### EXEMPLES 1 A 3

5

15

20

40

45

Les exemples 1 à 3 sont réalisés par compoundage à l'état fondu à l'aide d'une extruseuse bivis Haacke de laboratoire à partir de mélanges de granulés de polyamides transparents synthétisés à l'état fondu. Les polyamides transparents sont synthétisés à partir de: lauryllactame (L12), acides térephtalique (TA) et isophtalique (IA) et bis-(3-méthyl-4-aminocyclohexyl)méthane (BMACM). Les polyamides A et B et leurs proportions respectives en poids sont tels que la proportion en poids de motif aliphatique dans le mélange final est identique pour les quatre exemples.

### **EXEMPLE 4** (comparatif)

Cet exemple comparatif est le polyamide obtenu par synthèse directe, ayant la même proportion en poids de motif aliphatique que dans les exemples 1 à 3.

Dans le tableau 1 sont portés, pour les exemples 1 à 4, les compositions molaires, le pourcentage en poids de motif aliphatique -c'est-à-dire L12-, les fractions massiques des polyamides dans le mélange, les conditions de compoundage -température et vitesse- et les propriétés des polyamides (absorption d'EtOH, module de flexion).

25 .		; ,	•	4.1		BLEAU	1				
	,	PA (A)		PA (B)							
			Poids	Abs.		Poids	Abs.	\$ de 3 %	Temporature	5° .	Abs.
30		L12/TA/IA/	*	EtoH	L12/TR/LR/	. <b>x</b> '	Z tOH	dans-le	(°C)/vi-	Module	EtO
30	Ex.	BHACH	112	(*)	внасн_	<u>L12</u>	(*)	mélange	tesse (tr/mn)	MPa	(*)
	1	1/0.7/0.3/1	33.0	44	8/1/0/1	79.8	16,6	30.8	280/60	1680	29
	s. 2	1/0,7/0,3/1	33,0	44	7/1/9/1	a.,77,5	17	32.2	280/60	1640	29
35	3	1/0.7/0.3/1	33.0	44	3.8/1/0/1	:65.2	26.3	44,2	280/60	1640	33
	4	•		<b>.</b>	1.9/1/0/1	. "68.3	53	100	280/60	1610	53

#### EXEMPLES 5 A 11 ET 12 (comparatif)

Les exemples ont été réalisés suivant le mode opératoire de l'exemple 1. Les résultats sont consignés dans le tableau 2.

L'exemple 12 est l'exemple comparatif dont la proportion en poids de motif aliphatique est égale à celle des exemples 5 à 11.

Commence of the Secret

_		PA (A)			PA	PA (B)			the state of the s		
5		•	Poids	Abs.		Poids	Abs.	% de B	Température	• ,	Abs.
		L12/TA/IA/	*	EFOH	L12/TA/IA/	*	EtoH	dens le	(°C)/ <del>v</del> 1-	Module '	EtOH
	Ex.	BMACH	L12	(*)	BMACH	L12	(*)	sélange	tesse (tr/mn)	HPa	(*)
10	5	1/0.7/0.3/1	33.0	44	30/1/0/1	93.7		36	320/60	1720	24
10	6	1/0.7/0.3/1	33.0	. 44 -	20/1/0/1	. 90,8 (,		37.8	320/60	1690	24,4
	7	1/0.7/0.3/1	33.0	44	13/1/0/1	86.5		40,6	320/60	1660	24,9
	8	1/0.7/0.3/1	33.0	44	10/1/0/1	83.1	٠.	43.3	320/60	1650	25.7
15	9	1/0.7/0.3/1	33.0	44	8/1/0/1	79.8		46.2	280/60	1580	26.1
	10	1/0.7/0.3/1	33.0	44	7/1/0/1	77.5		48.5	280/60 '	1610	27,3
	11	1/0.7/0.3/1	33.0	. 44, -1	3.8/1/0/1	65.2		66,4	280/60	1550	30
20	12		-	-	2.4/1/0/1			. 4-25°		1550	43

### EXEMPLES 13 A 19

Dans ces exemples similaires aux exemples 1 à 3, le polymère à proportion en motif aliphatique faible est synthétisé à partir de L12, TA, IA, BMACM, tandis que le polymère à proportion en motif aliphatique élevé est synthétisé à partir de L12, TA, IA, bis-(4-aminocyclohexyl)méthane (BACM).

Les compositions, conditions opératoires et propriétés des polymères transparents obtenus par compoundage sont données dans le tableau 3.

### TABLEAU 3

	PA (A)			PR (B)							
			Poids	Abs.		Poids	Abe.	% de B	Température		Abs.
35		L12/TA/IA/	*	EtOH	L12/TA/LA/	· <b>x</b>	EtOH	dans le	-1 <del>-</del> 1-(5'')	Module	EFOR
	Ľx.	BHACH :	L12	<u>(%)</u>	BACH	<u> 112</u>	<u>(*)</u>	mélange	tesse (tr/mn)	MPa	(%)
40	13	1/0,7/0,3/1	33.0	44	7/1/0/1	34.6	17	10	280/60	1850	37.6
	14	1/0,7/0,3/1	33,0	44	7/1/0/1	34.6	17	30	280/60	1730	30
70	15	1/0.7/0.3/1	33,0	.44	7/1/0/1	34,6	17	50	280/60	1600	23,7
	16	1/0.7/0.3/1	33,0	44	7/1/0/1	34.6	17	70	280/60	1450	20
	17 ′	1/0.7/0.3/1	33.0	44	7/1/0/1	34.6	17	90	280/60	1305	17,8
45	18	1/0,85/0.25/1	32.1	39.2	7/1/0/1	34.6	17	45	280/60	1607	24.5
	19	1/0 8/0 2/1	33.0	40.6	7/1/0/1	74.6		45	200/60		20.0

### EXEMPLES 20 ET 21

50

55

Ces exemples sont mis en oeuvre selon le même mode opératoire que l'exemple 1. Les résultats sont consignés dans le tableau 4.

# **EXEMPLES 22 A 24**

Ces exemples sont mis en oeuvre selon le même mode opératoire que l'exemple 1. Dans ces exemples, le diacide est l'acide isophtalique exclusivement. Les résultats sont consignés dans le tableau 4.

### EXEMPLE 25 (comparatif)

5

10

15

20

25

30

35

40

50

Le polyamide selon l'exemple 25 est obtenu par synthèse directe et présente en poids la même composition que celle de l'exemple 24. Les résultats sont consignés dans le tableau 4.

### TABLEAU 4

20 3 43 . . . 5.6

	PA (A)		PA (B)				
		Poids	: ; _	Poids	% de ,8	Température	Abs.
	•			×	dans le	(*c)/ <del>*</del> i-	EFOH
Ex.	L12/TA/IA/BHACH	L12_	L12/TA/IA/BHACM	L12	mélange	tesse (tr/mn)	<u>(\$)</u>
20	0.8/0.6/0.4/1	28.3	7/1/0/1	77,5	40	280/60	28.7
21	0.8/0.6/0.4/1	28,3	7/1/0/1	77,5	50	280/60	26.1
;						•	
22	1/0/1/1	33.0	-	-	. ,	. / - · · ·	dissous (>50)
23	•	_	7/0/1/1	77.5	100	-	19
24	1/0/1/1	33.0	7/0/1/1	77,5	48,5	310/130	29
25	2.4/0/1/1	54.2	-	-		-	dissous (>50)

### Revendications

1.- Composition amorphe transparente à tenue aux agents chimiques élevée comprenant, en poids:

a) 1 à 99% d'un premier polyamide caractérisé par les enchaînements:

et

. o eè muio m

dans lesquels:

 $y_1$  et  $y_2$  sont des nombres dont la somme  $y_1 + y_2$  est comprise entre 10 et 200;

m, p, m', p' sont des nombres égaux ou supérieurs à 0;

Z et Z', dans les motifs aliphatiques -NH-Z-CO- et -NH-Z'-CO-, identiques ou différents sont soit un segment polyméthylène {CH<sub>2</sub>}<sub>n</sub> où n est un nombre entier égal ou supérieur à 6 et de préférence compris entre 7 et 11, soit une séquence contenant une fonction amide résultant de la condensation sensiblement standblemétrique d'une ou alusieurs diamine(s) aliphatique(s) contenant au moins 4 atomes de

au moins 4, et de préférence au moins 6, atomes de carbone entre les fonctions acides; -HN-R-NH- représente une amine cycloaliphatique et/ou aliphatique et/ou arylaliphatique;

### EP 0 553 581 A2

le diacide aromatique pouvant être remplacé, à raison d'au plus 30% en mole, par un diacide carboxylique aliphatique contenant plus de 4, de préférence 6, atomes de carbone entre les fonctions acides, lesdits enchaînements étant présents en des proportions telles que les motifs aliphatiques représentent moins de 55% en poids dudit premier polyamide; et

b) 99 à 1% d'un second polyamide caractérisé par les enchaînements:

et

10

15

20

25

30

35

40

50

55

dans lesquels:

y'<sub>1</sub> et y'<sub>2</sub> sont des nombres dont la somme y'<sub>1</sub> + y'<sub>2</sub> est comprise entre 10 et 200;

m", p", m"', p" sont des nombres égaux ou supérieurs à 0;

Z" et Z", dans les motifs aliphatiques -NH-Z"-CO- et -NH-Z"'-CO-, identiques ou différents sont soit un segment polyméthylène {CH<sub>2</sub>}<sub>n</sub>,où n' est un nombre entier égal ou supérieur à 6 et de préférence compris entre 7 et 11, soit une séquence contenant une fonction amide résultant de la condensation sensiblement stoechiométrique d'une ou plusieurs diamine(s) aliphatique(s) contenant au moins 4 atomes de carbone entre les fonctions amines et d'un ou plusieurs diacide(s) carboxylique(s) aliphatique(s) contenant au moins 4, et de préférence au moins 6, atomes de carbone entre les fonctions acides;

-HN-R'-NH- représente une amine cycloaliphatique et/ou aliphatique et/ou arylaliphatique; le diacide aromatique pouvant être remplacé, à raison d'au plus 30% en mole, par un diacide carboxylique aliphatique contenant plus de 4, de préférence 6, atomes de carbone entre les fonctions acides, lesdits enchaînements étant présents en des proportions telles que les motifs aliphatiques représentent plus de 55% en poids dudit second polyamide.

- 2.- Composition selon la revendication 1, caractérisée en ce que, dans ledit premier polyamide, les motifs aliphatiques représentent moins de 45% en poids dudit premier polyamide.
- 3.- Composition selon la revendication 2, caractérisée en ce que, dans ledit premier polyamide, les motifs aliphatiques représentent moins de 40% en poids dudit premier polyamide.
- 4.- Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, caractérisée en ce que, dans ledit second polyamide, les motifs aliphatiques représentent plus de 60% en poids dudit second polyamide.
- 5.- Composition selon la revendication 4, caractérisée en ce que, dans ledit second polyamide, les motifs aliphatiques représentent plus de 70% en poids dudit second polyamide.
  - 6.- Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 5, comprenant, en poids:
  - a) 5 à 95% dudit premier polyamide; et
  - b) 95 à 5% dudit second polyamide.
  - 7.- Composition selon la revendication 6, comprenant, en poids:
  - a) 20 à 80% dudit premier polyamide; et
  - b) 80 à 20% dudit second polyamide.
- 8. Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 7 caractérisée en ce que les motifs aliphátiques desdits premier et second polyamides sont choisis dans le groupe consistant en les motifs issus du
  capryllactame, du lauryllactame, de l'acide 12-aminododécanoïque, de l'acide 11-amino-undécanoïque, de
  l'acide 10-aminododécanoïque, et leurs mélanges.

- 9.- Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 8, caractérisée en ce que le motif aliphatique desdits prémier et second polyamides est le motif 12 issu du lauryllactame.
  - 10.- Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 9, caractérisée en ce que la diamine des-

# EP 0 553 581 A2

dits premier et second polyamides est une diamine cycloaliphatique.

11.- Composition selon la revendication 10, caractérisée en ce que ladite diamine cycloaliphatique desdits premier et second polyamides a pour formule:

$$A(A^h)$$
 $X (X^h)$ 
 $A(A^h)$ 
 $A(A^h)$ 

dans laquelle:

5

10

15

25

30

35

45

A (A') et B (B'), identiques ou différents, représentent l'atome d'hydrogène ou le radical méthyle;

X (X') et Y (Y'), identiques ou différents, représentent l'atome d'hydrogène ou le radical méthyle; et

q (q') est un nombre entier compris entre 1 et 3;

éventuellement remplacée jusqu'à 50% en mole par l'isophoronediamine.

12.- Composition selon la revendication 11, caractérisée en ce que la diamine cycloaliphatique desdits premier et second polyamides est le bis-(3-méthyl-4-aminocyclohexyl)méthane ou le bis-(4-aminocyclohexyl)méthane ou le bis-(4-aminocyclohexyl)méthane thane, éventuellement remplacée jusqu'à 50% en mole par l'isophoronediamine.

13.- Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 12, caractérisée en ce que, dans le(s)dit(s) premier et/ou second polyamide(s), le rapport  $y_1/y_1+y_2$  et/ou le rapport  $y_1/y_1+y_2$  est(sont) supérieur(s) à 0,5.

14.- Composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 13, caractérisée en ce qu'elle comprend de plus une charge et/ou un additif classique.

15.- Objets obtenus à partir d'une composition selon l'une quelconque des revendications 1 à 14.